

北京大气 PM₁₀ 中水溶性氯盐的观测研究

张凯^{1,2}, 王跃思^{1*}, 温天雪¹, 胡波^{1,2}, 刘广仁¹

(1. 中国科学院大气物理研究所, 北京 100029; 2. 中国科学院研究生院, 北京 100039)

摘要: 氯盐是大气气溶胶中重要水溶性无机盐, 对 2004 年全年北京大气可吸入颗粒中氯盐的变化进行了监测, 结果表明北京大气中可溶性氯盐的年均值在 $(3.1 \pm 1.7) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 采暖期平均浓度为 $(4.6 \pm 2.1) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 非采暖期平均浓度为 $(2.6 \pm 1.6) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$. 最低值出现在 5 月, 为 $(1.3 \pm 0.8) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$; 最高值出现在 12 月, 为 $(5.8 \pm 5.3) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$. 日变化在秋冬季多为白天浓度低, 晚上浓度高, 春夏季多呈现上午高, 下午低的特征; 季节变化呈现秋冬季高, 春夏季低的特点.

关键词: 北京; 大气; PM₁₀; 水溶性; 氯盐

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2006)05-0825-06

Water-Soluble Chloride in Aerosol PM₁₀ in Beijing

ZHANG Kai^{1,2}, WANG Yuesi¹, WEN Tianxue¹, HU Bo^{1,2}, LIU Guangren¹

(1. Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China; 2. Graduate School of the Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039, China)

Abstract: Water-soluble chloride is one of the most important components in aerosols. The chloride in PM₁₀ measured from January to December 2004 in Beijing was determined using a system by combing rapid collection of fine particles and ion chromatography (RCFP-IC). The results showed that the annual average concentration of water-soluble chloride at the urban area in Beijing was about $(3.1 \pm 1.7) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$; the average concentration of chloride during the heating period was $(4.6 \pm 2.1) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ while it was $(2.6 \pm 1.6) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ during the period no heating. The lowest concentration of $(1.3 \pm 0.8) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ appeared in May, and the highest concentration appeared of $(5.8 \pm 5.3) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ in December. Trends of the diurnal variation of water-soluble chloride depended on seasons. In autumn and winter, the higher concentration appeared in the daytime and the lower concentration appeared at night. In spring and summer, the higher concentration appeared at forenoon and the lower appeared at afternoon. Overall, the concentration of chloride in autumn and winter was higher than in spring and summer.

Key words: Beijing; atmosphere; PM₁₀; water-soluble; chloride

北京大气颗粒物污染日益严重, 可吸入颗粒物 (PM₁₀) 已成为北京首要污染物^[1]. 氯盐是 PM₁₀ 中水溶性阴离子的重要组成部分. 已有研究证明, 氯盐呈双峰模态^[2], 粗离子模态的氯盐主要来源于海盐, 细粒子模态的氯盐主要来源于大气中 HCl 气体和 NH₃ 气体反应生成的 NH₄Cl, 这一反应是动态平衡过程^[3~6], 与大气温度, 大气相对湿度 (RH) 和大气颗粒物的组成及性质有关. Harrison 等^[7] 用环形扩散管分别观测了干气溶胶 (相对湿度为 30% ~ 60%) 和湿气溶胶 (相对湿度 > 97%) 中 NH₄Cl 从颗粒物向大气的扩散速率. Pio 等^[3] 发现在相同温度下, 固体 NH₄Cl 比液体的更不稳定, 更容易分解.

以往的氯盐观测是以膜采样为主^[8~10], 每个样品的采集时间都在几小时以上, 得到的是一段期间的平均浓度. 随着在线技术的发展^[11~13], 采样频率提高, 采样时间增长, 样品数量增加, 氯盐的日变化和季变化开始引起人们的关注^[14, 15], 但长期的、连续的、实时的观测较少. 本文首次给出了水溶性氯盐

全年的、连续的和高频率的观测结果, 分析了水溶性氯盐的日变化、季变化以及年平均值, 并探讨了氯盐可能的源和汇.

1 材料与方法

1.1 实验原理

利用大气颗粒物快速捕集和离子色谱组成的 RCFP-IC (Rapid Collection of Fine Particles-Ion Chromatogram) 系统^[16], 实时、在线的采集、分析北京大气 PM₁₀ 气溶胶中水溶性氯盐的变化. 具体实验原理见文献^[17]: 切割头将空气中大于 PM₁₀ 的气溶胶粒子从气流中分离出, 含有 PM₁₀ 粒子的气流进入 RCFP-IC 系统, 扩散管将气态酸性和碱性物质去除, 通过扩散管的气流与过饱和水蒸气正交混和, 热的过饱和水蒸气与冷的含有 PM₁₀ 的气流在混合区

收稿日期: 2005-06-16; 修订日期: 2005-09-21

基金项目: 国家自然科学基金项目 (40525016)

作者简介: 张凯 (1977~), 女, 博士研究生, 主要研究方向为大气气溶胶化学成分分析.

* 通讯联系人

绝热膨胀,水蒸气在 PM_{10} 粒子表面凝结核使其成为直径更大的粒子,气流随后进入粒子增长区.随着温度的进一步降低,水蒸气不断在粒子表面冷凝,最终长成可被惯性撞击器捕获的大颗粒物.长大的气溶胶粒子被淋洗液(含内标)冲积到收集室底部,然后由蠕动泵将含有气溶胶可溶性化学成分的溶液样品转移到离子色谱中进行在线分析测定.样品在线分析的时间分辨率:2004-08~2004-10 为 15min,其它月份为 20min.

1.2 实验的质控

实验采用内标、外标相结合的方法,内标跟踪系统稳定性,校正仪器误差,外标用来定量.外标曲线浓度范围由实际样品浓度范围确定,标准溶液一般取分布均匀的 5~6 个不同浓度,大部分样品浓度位于标 2~标 5 之间,标准曲线相关性 R^2 在 0.99 以上,标准曲线在采样开始和采样结束各做一次.可溶性氯盐的最低检测线在 $0.3\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 左右.

1.3 气象资料

气象数据由同一监测点的 Milos520(vaisala,芬兰)自动气象站观测,气象要素由 DM520 数据采集器采集.

1.4 采样时间及地点

采样时间:2004 年全年共采集 Cl^- 样品天数为 210d,有效实验天数为 200d.平均每月采集天数为 18d.降水数据 4~12 月,其它气象数据 1~12 月.

采样地点:位于北京北三环和北四环之间的中国科学院大气物理研究所铁塔分布院内($39^\circ 58' \text{N}$, $116^\circ 22' \text{E}$),距北三环 1km,北侧 150m 为东西走向的北土城西路,东 200m 为八达岭高速公路,采样口在院内东二楼楼顶,距地面 15m 左右.

2 结果与讨论

2.1 北京大气 PM_{10} 中 Cl^- 季节变化

2.1.1 季节变化基本特征分析

北京大气气溶胶中可溶性氯盐的年均值在 $(3.1 \pm 1.7)\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,不同月份 Cl^- 平均浓度变化较大(表 1 和图 1).冬季(12 月、1 月、2 月)的平均浓度为 $4.8\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,春季(3 月~5 月)为 $1.8\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,夏季(6 月~8 月)为 $1.9\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,秋季(9 月~11 月)为 $4.0\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,平均浓度从高到低为冬季>秋季>夏季>春季,基本呈现秋冬季高,夏春季低的特征.月平均浓度最高值出现在 12 月份,最低值出现在 5 月份. Cl^- 的浓度与观测期内的天气状况和气象要素有密切关系.3 月份浓度较低可能是因为北京春季

多大风天气,大气层结不稳定,上下对流强烈,这些因素有利于低层污染物稀释.微风和静风(风速 $< 2\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$)时 Cl^- 的浓度约为 $4.0\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 左右,风速 $> 2\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 时 Cl^- 的浓度约为 $1.3\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 左右,大风对 Cl^- 有较明显的清除作用.由于仪器故障,5 月份仅有 1 周左右的观测记录,其中还有 2 次降雨过程,观测期内降水量占全月降水量的 80%,雨水的湿沉降作用使得 Cl^- 的浓度明显降低.

表 1 2004-01~2004-12 PM_{10} 水溶性氯盐月平均值/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$

Table 1 Monthly average concentrations of chloride in PM_{10} from January to December in 2004, in Beijing/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$

日期/月	月平均值±标准偏差(样本数)
1	$3.2 \pm 2.2(640)$
2	$5.3 \pm 4.8(632)$
3	$1.6 \pm 1.8(659)$
4	$2.3 \pm 1.9(1015)$
5	$1.3 \pm 0.8(287)$
6	$2.2 \pm 1.6(825)$
7	$1.7 \pm 1.2(1258)$
8	$1.8 \pm 1.1(875)$
9	$3.1 \pm 2.3(1373)$
10	$3.2 \pm 2.6(1825)$
11	$5.8 \pm 4.1(1699)$
12	$5.8 \pm 5.3(2046)$
年平均	3.1 ± 1.7

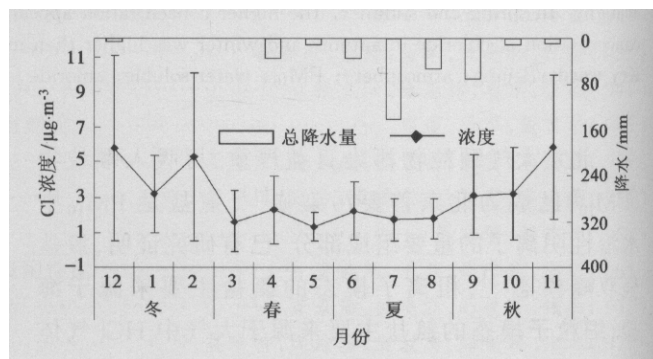


图 1 2004 年 PM_{10} 水溶性氯盐季节变化

Fig. 1 Seasonal variations of chloride in PM_{10} from January to December in 2004, in Beijing

对比观测时间较长的 11 月(采样时间 05~30)和 12 月(采样时间 01~31)实验结果,11 月份主要以晴天、静风天气为主,降水较少,只在 11-09 出现过 1 次小雨过程,而 12 月份出现了大风、雾、雨、雪等多种天气过程.虽然 12 月为采暖期,化石燃料的燃烧使得氯盐的源增强,但大风稀释和降水冲刷也使得氯盐的汇增强,因此 12 月份的总平均浓度略高于 11 月份.2 月、11 月、12 月氯盐的平均浓度都在 $5.0\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 以上,而 1 月份氯盐浓度只有 $(3.2 \pm 2.2)\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,这是因为 1 月份观测期内的大风天气

降低了 Cl^- 浓度.

2.1.2 季节变化与燃烧及降水的关系

Cl^- 在北京大气 PM_{10} 中浓度季节变化与排放源强弱和季节性气候变化有关. 化石燃料的燃烧容易形成多种含 Cl^- 的有机和无机物质, 北京冬季由于采暖燃烧, 使得北京气溶胶中 Cl^- 的浓度远高于非采暖期(图 1). 采暖期(11-15~次年 03-15)的平均浓度为 $(4.6 \pm 2.1) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 非采暖期(03-15~11-15)的平均浓度为 $(2.6 \pm 1.6) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 采暖期浓度是非采暖期的 1.8 倍, 这说明化石燃料的燃烧是北京大气 PM_{10} 中 Cl^- 的一个非常重要的来源.

北京春季干燥, 多大风, 稀释了近地层的污染物浓度, 夏季高温多雨, 湿冲刷也会降低大气中氯盐的浓度, 而秋冬季节北京大气层结稳定, 2004 年秋季多次出现污染天气 (<http://www.bjee.org.cn/api/>), 这使得近地层污染物不易扩散, 浓度升高, 因此氯盐的浓度高于春夏季节.

降水是 Cl^- 从大气中清除的一个重要途径, 气溶胶中氯化物都极易溶于水, 在有降水的天气中, 氯盐会经过湿沉降作用从大气中清除. 2004-07 降水总量远高于 6 月和 8 月(图 1), 但 Cl^- 平均浓度却没有明显下降, 这是因为 7 月份降水集中, 以 07-10 为例, 傍晚 17:00~19:00 的 2h 的降雨量达到 27.4mm, 短时间的强降雨量对于这段时间内 Cl^- 浓

度降低作用明显, 而对于月平均总浓度贡献较小, 长时间连续降水对 Cl^- 浓度降低效果更加明显.

07-12~07-16 作为典型晴天, Cl^- 平均浓度为 $2.5 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 07-25~07-28 作为典型雨天, Cl^- 平均浓度为 $1.7 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 雨天 Cl^- 平均浓度为晴天的 70% 左右, 下降 30%. 对比同时期观测的 NO_3^- 和 SO_4^{2-} , 雨天浓度比晴天浓度分别下降 50% 和 40%. NO_3^- 和 SO_4^{2-} 浓度下降幅度大于 Cl^- 的原因在于夏季晴天光照强烈, NO_x 和 SO_2 经光化学反应由气体直接转化为 NO_3^- 和 SO_4^{2-} 的颗粒物. 阴雨天没有太阳直接辐射, NO_x 和 SO_2 的直接转化效率降低, NO_3^- 和 SO_4^{2-} 的源减弱, 湿冲刷的汇增强, 因此 NO_3^- 和 SO_4^{2-} 浓度下降幅度大于 Cl^- . 阴天由于空气中水汽浓度大, 相对湿度高, 大气中的 HCl 气体易溶于水, 或在气溶胶表面发生均相、非均相化学反应生成 Cl^- , 此时 Cl^- 浓度会有一个较高值, 直到降雨(雪)发生, Cl^- 才会通过湿沉降从大气中清除.

2.2 北京大气 PM_{10} 中 Cl^- 日变化

2.2.1 不同季节的日变化形式

北京大气 PM_{10} 中 Cl^- 浓度在不同季节日变化明显不同(图 2). 春季和夏季呈现明显的上午浓度高, 下午浓度低的日变化形式, 峰值出现在上午 06:00~07:00 左右, 谷值出现在傍晚 16:00~19:00

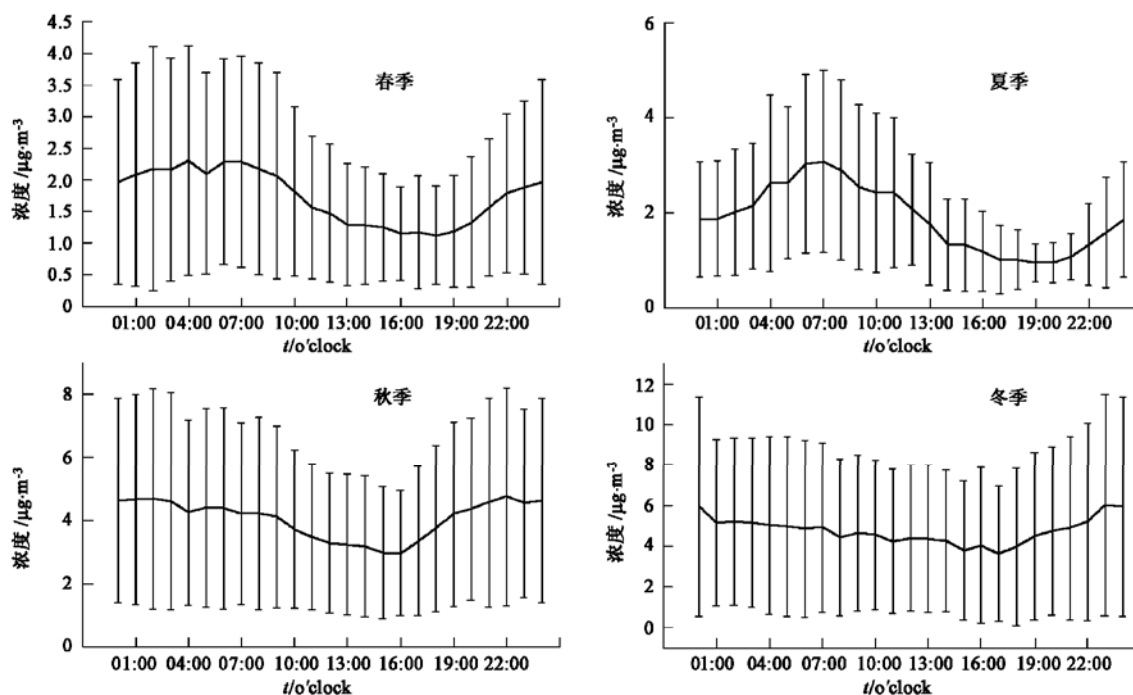


图 2 2004 年北京大气 PM_{10} 中 Cl^- 平均日变化

Fig. 2 Diurnal variations of chloride in PM_{10} , 2004, in Beijing

左右,这种现象与周福民等^[15]用 SJAC-MOBIC 观测北京 2000 年 5、6、9 月氯盐的变化相似.春夏季节高浓度 Cl^- 出现在上午可能有以下几个原因:①早晨交通高峰引起的地面浮尘和汽车尾气排放;②上午边界层大气稳定,气溶胶不易扩散, Cl^- 在低空聚集.而下午浓度低的主要原因是稳定的大气边界层结构被破坏,湍流强烈,上下层大气交换加剧,扩散加强,聚集于近地层气溶胶和污染气体被稀释, Cl^- 的浓度也随之降低.另外,春夏季节午后温度高,相对湿度低,气溶胶表面的 Cl^- 也会经化学转化为易挥发的气体^[4]而使 Cl^- 的浓度降低.

秋季和冬季日变化主要表现为白天浓度低,晚上浓度高. Cl^- 的高浓度出现在晚上,这是因为:①北京秋冬季节晚上温度较低,供暖强度大,燃料燃烧排放的 Cl^- 较多;②低温高湿条件下,大气中的 HCl 等含 Cl 气体易与气溶胶表面发生均相、非均相化学反应,生成含 Cl^- 的气溶胶;③稳定的大气层结使其不容易扩散,因此晚上浓度高.白天边界层的扩散要强于夜间,因此白天 Cl^- 的浓度略低于夜间.但北京秋冬季节的温度普遍较低,发生于气溶胶表面的化学反应较弱,因此秋冬季节 Cl^- 浓度的日变化范围要远小于春夏季节.

2.2.2 晴天、雨天日变化形式

以 07-12~07-16 作为典型晴天,07-25~07-28 作为典型雨天讨论 Cl^- 在晴天和雨天的日变化形式.从图 3 可以看出,晴天日变化与夏季平均日变化非常相似,呈现上午浓度高,下午浓度低的变化趋势,而阴雨天气中 Cl^- 的日变化形式则比较复杂,因为在降水过程中, Cl^- 可以通过湿沉降从大气中清除,在降水结束后低浓度也会维持一段时间.因此,阴雨天气中 Cl^- 的日变化与降水起止时间,降水持续时间长短,以及降水量的大小有关.

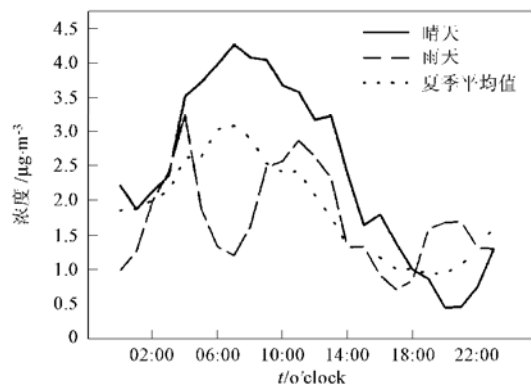


图 3 晴天和雨天 Cl^- 日变化形式

Fig. 3 Diurnal variations of chloride in sun day and rain

2.2.3 采暖期、非采暖期日变化形式

从图 4 可以看出, Cl^- 在采暖期和非采暖期有明显不同的日变化形式.采暖期(11-15~次年 03-15)日变化规律与秋冬季节的日变化非常相似(图 2),白天浓度明显低于夜间浓度,而非采暖期(03-15~11-15)的日变化规律与夏秋季节非常相似,高值出现在上午 08:00 左右,低值出现在下午 16:00 左右.全年的日变化形式介于两者之间,与非采暖期的更为相似,但振幅变小.

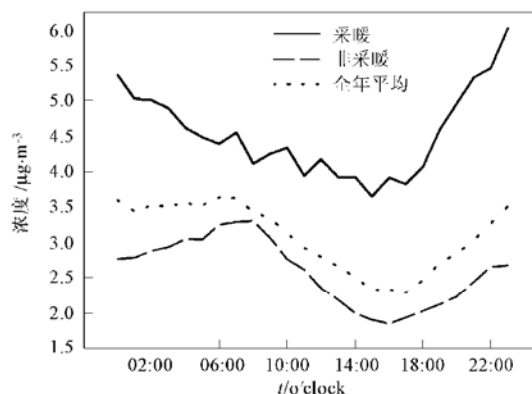


图 4 采暖和非采暖期 Cl^- 日变化形式

Fig. 4 Diurnal variations of chloride during the heating period and the non-heating period

2.3 源和汇讨论

气溶胶中氯盐的来源包括自然源和人为源,自然源主要来自于土壤、海盐^[18,19],人为源包括燃料的燃烧^[20,6],化工厂含氯(包括 NaCl 、 KCl 等)物质的排放,农药、化肥和消毒剂中氯的挥发,以及大气中含氯气态物质(例如 NH_4Cl 、 HCl)的均相、非均相转化过程形成的^[4].

具体来源可以分为以下 4 类:①海盐.沿海地区受海盐影响较大,空气中 Cl^- 的含量较多,厦门^[18]和青岛^[19]的大气气溶胶中 Cl^- 的浓度都达到 $5 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 以上.②煤燃烧.化石燃料的燃烧容易形成多种含 Cl^- 的有机和无机物质(如 HCl), Lightowers 等^[20]研究发现英国每年煤燃烧排放到大气中的 HCl 为 16kt,日本^[6]为 34kt.③交通.王玮等^[21]对隧道内和隧道外 TSP 中 Cl^- 的研究发现,隧道内 Cl^- 的浓度要远高于隧道外,说明汽车尾气和交通扬尘也是气溶胶中 Cl^- 的一个来源.④大气化学反应.大气中存在(1)式的反应,细颗粒物中的氯盐主要来源于 NH_4Cl ,它与气态前体物 HCl 和 NH_3 存在化学反应平衡,这种平衡与大气温度和大气相对湿度(RH)有关^[3~7],在低温高 RH 条件下, HCl 和 NH_3 结合

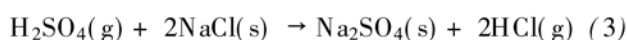
生成 NH_4Cl , 反应 (1) 式向右进行, 颗粒物中 Cl^- 浓度升高, 反之向左进行, Cl^- 浓度降低. Matsumoto 等^[4] 研究表明如果大气中的 NH_4Cl 较多, 则 Cl^- 主要来源于 NH_4Cl 的均相转化过程, 反之则来自非均相转化过程.



另外, 制造农药、漂白剂、消毒剂、塑料、合成纤维等工厂排出的氯气也是大气气溶胶中 Cl^- 的来源之一, 不同来源的可溶性氯盐所占比重的大小还有待于通过源解析的方法进一步确定.

气溶胶中可溶性氯盐一般以干湿沉降的形式从大气中清除, 或通过气溶胶表面的各种化学过程转化为其它物质. 当大气中有其它强酸气体 (如 HNO_3 , H_2SO_4) 存在时, 在颗粒物 (如海盐) 表面的液体界面上会发生 (2) ~ (3) 式的非均相的置换反应, Cl^- 与 H^+ 结合生成 HCl 气体从颗粒物中挥发

来^[4, 22, 23].



另外, 大气边界层的稳定度、相对湿度、风向风速等都会影响 Cl^- 浓度. 以 01-03~ 01-12 为例说明 Cl^- 浓度变化与相对湿度和风速的相关性. 从图 5 可以看出 Cl^- 浓度与相对湿度呈明显的正相关 ($r = 0.724$, $\alpha = 0.01$, $n = 872$), 与风速呈负相关 ($r = -0.363$, $\alpha = 0.01$, $n = 872$). 在相对湿度较高风速较低的 6 日、8~ 9 日、11 日 Cl^- 浓度也较高.

风向的不同可以反映不同来源气团对 Cl^- 浓度的影响. 采样点位于北京市北部, 向北接近北京郊区, 东、南主要是城区. 由于 Cl^- 浓度与风速有明显负相关性 (图 5), 当风速 $v > 2\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时, Cl^- 浓度明显降低, 因此分别讨论 Cl^- 在 $v > 2\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ 和 $< 2\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ 不同风速下的浓度变化. 从图 6 可以看

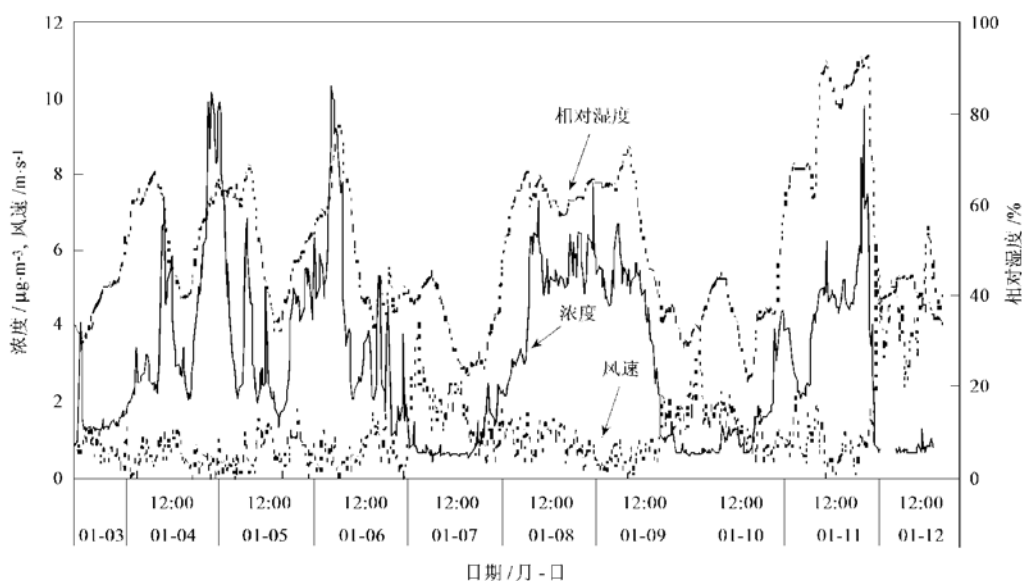


图 5 2004-01-03~ 2004-01-12 PM_{10} 中 Cl^- 浓度与风速、相对湿度变化的关系

Fig. 5 Variations of chloride in PM_{10} with wind speed and relative humidity (2004-01-03~ 2004-01-12)

出, 在 $v < 2\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时 Cl^- 浓度变化范围是 $3 \sim 5 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 浓度高值区出现在东风和东北风方向, 其它几个方向上浓度相差不大. 在 $v > 2\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时 Cl^- 浓度变化范围在 $1 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 左右, 浓度高值区出现在东南方向上, 这反映了城区排放污染源对观测点的影响, 结合风速随风向的分布, 还可以看出在风速较高的风向上, 浓度较低.

3 结论

(1) 北京可溶性氯盐的季变化形式是秋冬季浓

度高于夏春季, 最小值出现在 5 月, 最大值出现在 12 月, 这与降水和冬季采暖化石燃料的燃烧有关.

(2) 北京可溶性氯盐的日变化基本出现 2 种不同的变化形式, 一种是白天浓度低, 晚上浓度高, 这种日变化形式主要出现在秋冬季节. 另一种是上午浓度高, 下午浓度低, 这种日变化形式主要出现在夏春季. 这可能与不同季节大气边界层层结状况的不同有关.

(3) 湿沉降和大风都能明显降低可溶性氯盐的浓度.

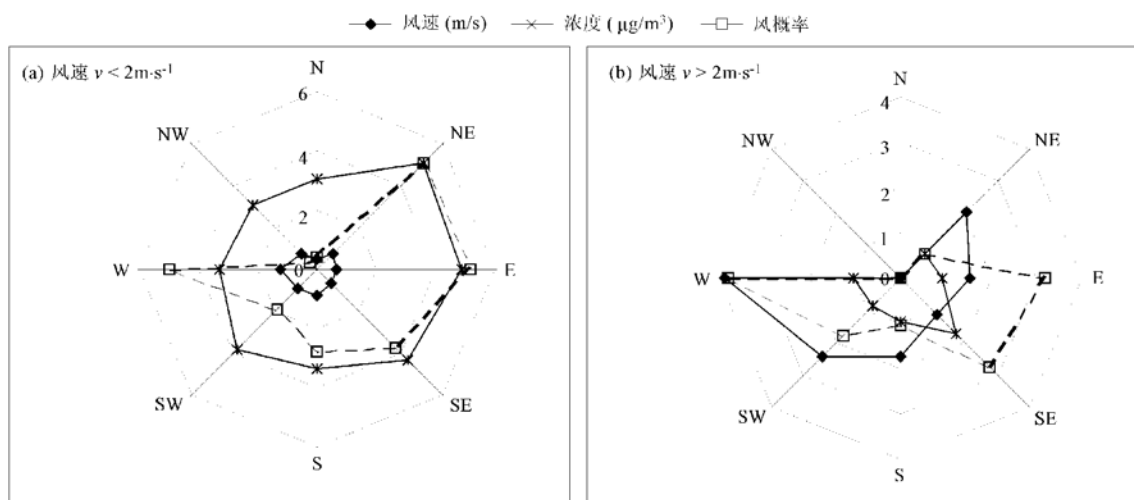
图6 Cl^- 浓度、风速随风向的变化(01-03~ 01-12)

Fig. 6 Chloride concentration and wind speed variations based on wind direction

致谢: 感谢张文研究员在实验期间给予的帮助和李江在实验方面所做的部分工作。

参考文献:

- [1] Xu D, Dan M, Song Y, *et al.* Concentration characteristics of extractable organohalogenes in $\text{PM}_{2.5}$ and PM_{10} in Beijing, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2005, **39**: 4119~ 4128.
- [2] Kadowaki S. Size distribution of atmospheric total aerosols, sulfate, ammonium and nitrate particulates in the Nagoya area [J]. *Atmospheric Environment*, 1976, **10**: 39~ 43.
- [3] Pio C A, Harrison R M. Vapour pressure of ammonium chloride aerosol: Effect of temperature and humidity [J]. *Atmospheric Environment*, 1987, **21**: 2711~ 2715.
- [4] Matsumoto K, Tanaka H. Formation and dissociation of atmospheric particulate nitrate and chloride: An approach based on phase equilibrium [J]. *Atmospheric Environment*, 1996, **30** (4): 639~ 648.
- [5] Robarge W P, Walker J T, McCulloch R B, *et al.* Atmospheric concentrations of ammonia and ammonium at an agricultural site in the southeast United States [J]. *Atmospheric Environment*, 2002, **36**: 1661~ 1674.
- [6] Kaneyasu N, Yoshikodo H, Mizuno T, *et al.* Chemical forms and sources of extremely high nitrate and chloride in winter aerosol pollution in the Kanto Plain of Japan [J]. *Atmospheric Environment*, 1999, **33**: 1745~ 1756.
- [7] Harrison R M, Sturges W T, Kitto M N, *et al.* Kinetics of evaporation of ammonium chloride and ammonium nitrate aerosols [J]. *Atmospheric Environment*, 1990, **24A**: 1883~ 1888.
- [8] Matsumoto K, Nagao I, Tanaka, H, *et al.* Seasonal characteristics of organic and inorganic species and their size distributions in atmospheric aerosols over the northwest Pacific Ocean [J]. *Atmospheric Environment*, 1998, **32**: 1931~ 1946.
- [9] Acker K, Möller D, Marquardt W, *et al.* Atmospheric research program for studying changing emission patterns after German Unification [J]. *Atmospheric Environment*, 1998, **32**: 3435~ 3443.
- [10] Topping D, Coe H, McFiggans G, *et al.* Aerosol chemical characteristics from sampling conducted on the Island of Jeju, Korea during ACE Asia [J]. *Atmospheric Environment*, 2004, **38**: 2111~ 2123.
- [11] Carson P G, Neubauer K R, *et al.* Online chemical analysis of aerosols by rapid single particle mass spectrometry [J]. *Journal of Aerosol Science*, 1995, **26** (4): 535~ 545.
- [12] Simon P K, Dasgupta P K. Continuous automated measurement of the soluble fraction of atmospheric particulate matter [J]. *Analytical Chemistry*, 1995, **67**: 71~ 78.
- [13] Karlsson A, Irgum K, Hansson H C. Single stage flowing liquid film impactor for continuous online particle analysis [J]. *Journal of Aerosol Science*, 1997, **28**: 1539~ 1551.
- [14] 温天雪, 王跃思, 何新星, 等. 北京大气 PM_{10} 中水溶性阴离子观测研究 [J]. *过程工程学报*, 2004, **4** (增刊): 777~ 782.
- [15] 周福民, 邵可声, 胡敏, 等. 北京大气气溶胶部分无机组分及相关气体的浓度变化 [J]. *环境科学*, 2002, **23** (1): 11~ 15.
- [16] 刘广仁, 王跃思, 温天雪, 等. 大气细粒子的快速捕集及化学成分在线分析方法研究 [J]. *环境污染治理技术与设备*, 2002, **3** (11): 10~ 14.
- [17] 张凯, 王跃思, 温天雪, 等. 采暖期北京大气 PM_{10} 水溶性离子成分分析研究 [J]. *过程工程学报*, 2004, **4** (增刊): 788~ 792.
- [18] 张远辉, 黄自强, 陈立奇. 海洋大气气溶胶的离子色谱分析 [J]. *台湾海峡*, 1994, **13** (2): 144~ 150.
- [19] 王珉, 胡敏. 青岛沿海地区大气气溶胶浓度与主要无机化学组成 [J]. *环境科学*, 2001, **22** (1): 6~ 9.
- [20] Lightowers, P J, Cape N J. Sources and fate of atmospheric HCl in the U. K. and Western Europe [J]. *Atmospheric Environment*, 1988, **22**: 7~ 15.
- [21] 王玮, 叶慧海, 金大善, 等. 交通来源颗粒物及其无机成分污染特征的研究 [J]. *环境科学研究*, 2001, **14** (4): 27~ 31.
- [22] Kerminen V M, Pakkanen T A, Hillamo R E. Interactions between inorganic trace gases and supermicrometer particles at coastal site [J]. *Atmospheric Environment*, 1997, **31**: 2753~ 2765.
- [23] Pakkanen T A. Study of formation of coarse particle nitrate aerosol [J]. *Atmospheric Environment*, 1996, **30**: 2475~ 2482.